

15.11.2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

REC'D 13 JAN 2005

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年 1 1 月 1 2 日  
Date of Application:

出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 3 8 2 5 3 6  
Application Number:  
[ST. 10/C]:            [ J P 2 0 0 3 - 3 8 2 5 3 6 ]

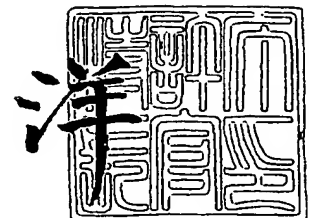
出    願    人            日 本 碍 子 株 式 有 限 公 司  
Applicant(s):

**PRIORITY DOCUMENT**  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年 1 2 月 2 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

小 川



【書類名】 特許願  
【整理番号】 03P00392  
【提出日】 平成15年11月12日  
【あて先】 特許庁長官殿  
【国際特許分類】 C04B 38/00  
B01D 39/20  
B01J 35/04

【発明者】  
【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内  
【氏名】 榊川 直

【発明者】  
【住所又は居所】 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 日本碍子株式会社内  
【氏名】 市川 周一

【特許出願人】  
【識別番号】 000004064  
【氏名又は名称】 日本碍子株式会社

【代理人】  
【識別番号】 100108707  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 中村 友之  
【電話番号】 03-3504-3075

【代理人】  
【識別番号】 100083806  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 三好 秀和

【選任した代理人】  
【識別番号】 100095500  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 伊藤 正和

【選任した代理人】  
【識別番号】 100101247  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 高橋 俊一

【選任した代理人】  
【識別番号】 100098327  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 高松 俊雄

【選任した代理人】  
【識別番号】 100108914  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 鈴木 壯兵衛

【選任した代理人】  
【識別番号】 100104031  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 高久 浩一郎

【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 001982  
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】  
【物件名】 特許請求の範囲 1

【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1  
【包括委任状番号】 0110307

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

多孔質の隔壁によって仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有したハニカムセグメントの複数が接合材によって接合されたハニカム構造体であって、

前記接合材が粒状体からなるフィラーを含有したセラミックスを主成分としていることを特徴とするハニカム構造体。

**【請求項 2】**

請求項 1 記載の発明であって、前記粒状体が平均  $10 \sim 300 \mu\text{m}$  の範囲の直径であることを特徴とするハニカム構造体。

**【請求項 3】**

請求項 1 または 2 記載の発明であって、前記粒状体が接合材中に  $20 \sim 70$  体積% 含有されていることを特徴とするハニカム構造体。

**【請求項 4】**

請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載の発明であって、前記粒状体が中空であることを特徴とするハニカム構造体。

**【請求項 5】**

請求項 1 記載の発明であって、前記接合材が無機粒子、酸化物繊維、コロイド状酸化物をさらに含有していることを特徴とするハニカム構造体。

**【請求項 6】**

多孔質の隔壁によって仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有したハニカムセグメントの複数が接合材によって接合されたハニカム構造体であって、

粒状体からなるフィラーを含有したセラミックスを主成分としたコーティング材によって外周面が被覆されていることを特徴とするハニカム構造体。

**【請求項 7】**

請求項 6 記載の発明であって、前記粒状体が平均  $10 \sim 300 \mu\text{m}$  の範囲の直径であることを特徴とするハニカム構造体。

**【請求項 8】**

請求項 6 または 7 記載の発明であって、前記粒状体がコーティング材中に  $20 \sim 70$  体積% 含有されていることを特徴とするハニカム構造体。

**【請求項 9】**

請求項 6 ～ 8 のいずれか 1 項に記載の発明であって、前記粒状体が中空であることを特徴とするハニカム構造体。

**【請求項 10】**

請求項 6 記載の発明であって、前記コーティング材が無機粒子、酸化物繊維、コロイド状酸化物をさらに含有していることを特徴とするハニカム構造体。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 ハニカム構造体

【技術分野】

【0001】

本発明は、複数のハニカムセグメントを接合して構成されるフィルタに関し、特に、排ガス中のパティキュレート等を捕集するために用いるハニカム構造体に関する。

【背景技術】

【0002】

フィルタの一種としてのDPF（ディーゼルパティキュレートフィルタ）は、ディーゼルエンジン等からの排ガスに含まれているパティキュレートを捕捉して除去するため、ディーゼルエンジンの排気系に組み込まれている。このDPFを始めとする捕集フィルタには、複数のハニカムセグメントを並列状に接合したハニカム構造体が用いられている。

【0003】

ハニカム構造体は、炭化珪素等からなる多孔質のハニカムセグメントが接合材によって複数接合され、円形断面等の所定の形状に成形された後、周囲がコーティング材により被覆された構造となっている。それぞれのハニカムセグメントは多孔質の隔壁によって仕切られた状態で軸方向に貫通する多数の流通孔を有している。隣接している流通孔においては、一端部が交互に目封じされるものであり、一の流通孔においては、一側の端部が開口している一方、他側の端部が目封じされており、これと隣接する他の流通孔においては、他側の端部が目封じされるが、一側の端部が開口されている。

【0004】

このような構造とすることにより、開口している端部から排ガスが流通孔に流入すると、排ガスは多孔質の隔壁を通過して他の流通孔から流出し、隔壁を通過する際に排ガス中のパティキュレートが隔壁に捕捉されるため、排ガスの浄化を行うことができる。

【0005】

このようなハニカム構造体において、ハニカムセグメントを接合する接合材及び周囲を被覆するコーティング材としては、良好な塗布性が要求される。特に、接合材においては、ハニカムセグメント圧着時の良好な延び性も要求されるものである。これらの特性を得るには、塗布時の接合材及びコーティング材の粘度を下げるのが有効な手段となっている。しかしながら、低粘度の接合材及びコーティング材では、使用する溶媒量が多くなるため、乾燥時における脱水収縮量が大きくなる。このため、接合材では接合部剥れやクラックが発生したり、コーティング材では小孔やクラック等の欠陥を生じ易いものとなる。

【0006】

このようなことから、従来においては、特許第3121497号公報に記載されるように、有機バインダーを接合材に添加することにより、乾燥硬化の過程でのマイグレーションの発生を抑制し、欠陥を抑制してハニカム構造体の耐久性を向上させている。

【0007】

この従来技術では、有機バインダーとしては、ポリビニルアルコール、メチルセルロース、エチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等を使用し、特にカルボキシメチルセルロースが望ましく、組立て時の流動性を確保できることを開示している。

【特許文献1】 特許第3121497号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

しかしながら、上述した従来技術においては、接合材やコーティング材に有機バインダーを添加した場合、接合材やコーティング材の混練中に一旦粘度が大きくなり、混練を継続すると粘度が低下してくるという状態の変化が起こるため、不安定であり、塗布性や延び性を向上させるための調整が難しい問題を有している。

【0009】

本発明は、このような従来の問題点を考慮してなされたものであり、接合材やコーティ

ング材の塗布性及び延び性を良好に向上させることが可能であり、これにより、クラック等の欠陥の発生を確実に抑制することができるハニカム構造体を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0010】

上記目的を達成するため、請求項1の発明のハニカム構造体は、多孔質の隔壁によって仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有したハニカムセグメントの複数が接合材によって接合されたハニカム構造体であって、前記接合材が粒状体からなるフィラーを含有したセラミックスを主成分としていることを特徴とする。

【0011】

請求項1の発明に用いる粒状体のフィラーは、接合材中で転がりやすいため、接合材を塗布する際や圧着する際に接合材が良好に延びることができる。このため、溶媒を多く用いて接合材の粘度を低下させる必要がなく、乾燥時の脱水収縮を抑制することができ、乾燥時における接合部の剥がれやクラック等の欠陥の発生を抑制することができる。また、混練時の粘度変化が小さいため、接合材が安定し、その塗布性及び延び性を向上させる調整が容易となる。

【0012】

請求項2の発明は、請求項1記載の発明であって、前記粒状体が平均10～300 $\mu$ mの範囲の直径であることを特徴とする。

【0013】

粒状体の平均直径を請求項2の発明のような範囲とすることにより、フィラーの転がり性を確保でき、しかも、接合材に良好な乾燥性を付与することができる。

【0014】

請求項3の発明は、請求項1または2記載の発明であって、前記粒状体が接合材中に20～70体積%含有されていることを特徴とする。

【0015】

請求項3の発明のような粒状体の含有量とすることにより、接合材の塗布性、延び性を確保できると共に、接合材としての強度を保持することが可能となり、耐久性を向上させることができる。

【0016】

請求項4の発明は、請求項1～3のいずれか1項に記載の発明であって、前記粒状体が中空であることを特徴とする。

【0017】

請求項4の発明では、粒状体の中空となっていることにより、接合材のヤング率が低減する。このため、ハニカム構造体の耐熱衝撃性を向上し、使用時のクラックの発生をさらに確実に抑制することができる。

【0018】

請求項5の発明は、請求項1記載の発明であって、前記接合材が無機粒子、酸化物繊維、コロイド状酸化物をさらに含有していることを特徴とする。

【0019】

請求項5の発明のように、無機粒子、酸化物繊維、コロイド状酸化物を含有することにより、接合材としての特性を向上させることができる。

【0020】

請求項6の発明は、多孔質の隔壁によって仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔を有したハニカムセグメントの複数が接合材によって接合されたハニカム構造体であって、粒状体からなるフィラーを含有したセラミックスを主成分としたコーティング材によって外周面が被覆されていることを特徴とする。

【0021】

請求項6の発明では、請求項1の発明のように粒状体からなるフィラーを用い、このフィラーをコーティング材に含有させることにより、フィラーの転がりやすい特性をコーテ

イング材に付与することができる。

【0022】

従って、コーティング材が良好に延びた塗布を行うことができるため、コーティング材の粘度を低下させる必要がなく、乾燥時の脱水収縮を抑制することができ、乾燥時における小孔やクラック等の欠陥の発生を抑制することができる。

【0023】

また、混練時の粘度変化が小さいため、コーティング材が安定し、その塗布性や延び性を向上させる調整が容易となる。

【0024】

請求項7の発明は、請求項6記載の発明であって、前記粒状体が平均10～300 $\mu$ mの範囲の直径であることを特徴とする。

【0025】

粒状体の平均直径を請求項7の発明のような範囲とすることにより、粒状体の転がり性を確保でき、しかも、コーティング材に良好な乾燥性を付与することができる。

【0026】

請求項8の発明は、請求項6または7記載の発明であって、前記粒状体がコーティング材中に20～70体積%含有されていることを特徴とする。

【0027】

請求項8の発明のような粒状体の含有量とすることにより、コーティング材の塗布性、延び性を確保できると共に、コーティング材としての強度を保持することが可能となり、耐久性を向上させることができる。

【0028】

請求項9の発明は、請求項6～8のいずれか1項に記載の発明であって、前記粒状体が中空であることを特徴とする。

【0029】

このように、粒状体の中空となっていることにより、コーティング材のヤング率が低減する。このため、ハニカム構造体の耐熱衝撃性が向上し、使用時のクラックの発生をさらに確実に抑制することができる。

【0030】

請求項10の発明は、請求項6記載の発明であって、前記コーティング材が無機粒子、酸化物繊維、コロイド状酸化物をさらに含有していることを特徴とする。

【0031】

請求項10の発明のように、無機粒子、酸化物繊維、コロイド状酸化物を含有することにより、コーティング材としての特性を向上させることができる。

【発明の効果】

【0032】

請求項1の発明によれば、接合材を塗布する際や圧着する際に接合材が良好に延びるため、接合材の粘度を低下させる必要がなく、乾燥時の脱水収縮を抑制することができ、乾燥時における接合部の剥がれやクラック等の欠陥の発生を抑制することができ、しかも、混練時の粘度変化が小さいため、接合材が安定し、その塗布性や延び性を向上させる調整が容易となる。

【0033】

請求項2の発明によれば、請求項1の発明の効果に加えて、フィラーの転がり性を確保でき、接合材に良好な乾燥性を付与することができる。

【0034】

請求項3の発明によれば、請求項1及び2の発明の効果に加えて、接合材の塗布性、延び性を更に確実に確保できると共に、接合材としての強度を保持することが可能となり、耐久性を向上させることができる。

【0035】

請求項4の発明によれば、請求項1～3の発明の効果に加えて、接合材のヤング率が低

減するため、ハニカム構造体の耐熱衝撃性が向上し、使用時のクラックの発生をさらに確実に抑制することができる。

【0036】

請求項5の発明によれば、請求項1の発明の効果に加えて、接合材としての特性を向上させることができる。

【0037】

請求項6の発明によれば、コーティング材が良好に延びて塗布されるため、コーティング材の粘度を低下させる必要がなく、乾燥時の脱水収縮を抑制することができ、乾燥時における小孔やクラック等の欠陥の発生を抑制することができ、しかも、混練時の粘度変化が小さいため、コーティング材が安定し、その塗布性や延び性を向上させる調整が容易となる。

【0038】

請求項7の発明によれば、請求項6の発明の効果に加えて、フィラーの転がり性を確保でき、コーティング材に良好な乾燥性を付与することができる。

【0039】

請求項8の発明によれば、請求項6及び7の発明の効果に加えて、コーティング材の塗布性、延び性を確保できると共に、コーティング材としての強度を保持することが可能となり、耐久性を向上させることができる。

【0040】

請求項9の発明によれば、請求項6～8の発明の効果に加えて、コーティング材のヤング率が低減するため、ハニカム構造体の耐熱衝撃性が向上し、使用時のクラックの発生をさらに確実に抑制することができる。

【0041】

請求項10の発明によれば、請求項6の発明の効果に加えて、コーティング材としての特性を向上させることができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0042】

図1及び図2は、本発明の一実施形態におけるハニカム構造体1を示す。ハニカム構造体1は、複数のハニカムセグメント2が接合材9を介して接合されることにより形成されるものであり、接合材9によるハニカムセグメント2の接合の後、円形断面、楕円断面、三角断面その他の断面となるように研削加工され、外周面がコーティング材4によって被覆される。このハニカム構造体1をDPFとして用いる場合、ディーゼルエンジンの排ガスの流路に配置することにより、ディーゼルエンジンから排出されるスootを含むパーティキュレートを捕捉することができる。

【0043】

それぞれのハニカムセグメント2は、図3及び図4に示すように、多孔質の隔壁6によって仕切られた多数の流通孔5を有している。流通孔5はハニカムセグメント2を軸方向に貫通しており、隣接している流通孔5における一端部が充填材7によって交互に目封じされている。

【0044】

すなわち、一の流通孔5においては、左端部が開放されている一方、右端部が充填材7によって目封じされており、これと隣接する他の流通孔5においては、左端部が充填材7によって目封じされるが、右端部が開放されている。このような目封じにより、図2に示すように、ハニカムセグメント2の端面が市松模様状を呈するようになる。

【0045】

このようなハニカムセグメント2が組み付けられたハニカム構造体1を排ガスの流路内に配置した場合、排ガスは図4の左側から各ハニカムセグメント2の流通孔5内に流入して右側に移動する。

【0046】

すなわち、図4においてはハニカムセグメント2の左側が排ガスの入口となるもので



あり、排ガスは、目封じされることなく開放されている流通孔5からハニカムセグメント2内に流入する。流通孔5に流入した排ガスは、多孔質の隔壁6を通過して他の流通孔5から流出する。そして、隔壁6を通過する際に排ガス中のスートを含むパーティキュレートが隔壁6に捕捉される。

#### 【0047】

このため、排ガスの浄化を行うことができる。このような捕捉によって、ハニカムセグメント2の内部にはスートが経時的に堆積して圧力損失が大きくなるため、スートを燃焼させる再生が行われる。

#### 【0048】

なお、図示するハニカムセグメント2は、正方形断面となっているが、三角形断面、六角形断面等の適宜の断面形状とすることが可能である。また、流通孔5の断面形状においても、三角形、六角形、円形、楕円形、その他の形状とすることができ。

#### 【0049】

接合材9は、図2に示すように、ハニカムセグメント2の外面に塗布されることにより、ハニカムセグメント2を接合するように作用する。接合材9の塗布は、隣接しているそれぞれのハニカムセグメント2の外面に行っても良いが、隣接したハニカムセグメント2においては、対応した外面の一方に対してだけ行っても良い。

#### 【0050】

このような対応面の片側だけへの塗布では、接合材9の使用量を節約できる点で好ましい。接合材9の厚さは、ハニカムセグメント2の接合力を加味して決定されるものであり、0.2～4.0mmの範囲で適宜選択される。

#### 【0051】

コーティング材4は、ハニカムセグメント2の接合体の外周面に塗布されることにより、ハニカムセグメント接合体の外周面を保護する。コーティング材4の厚さは、0.1～1.5mmの範囲で適宜変更されるものである。

#### 【0052】

ハニカムセグメント2の材料としては強度、耐熱性の観点から、炭化珪素、珪素-炭化珪素系複合材料、窒化珪素、コージェライト、ムライト、アルミナ、スピネル、炭化珪素-コージェライト系複合材、珪素-炭化珪素複合材、リチウムアルミニウムシリケート、チタン酸アルミニウム、Fe-Cr-Al系金属からなる群から選択される1種もしくは複数種を組み合わせた材料を使用することが好ましい。この内、炭化珪素または珪素-炭化珪素系複合材料が特に好ましく用いられる。

#### 【0053】

ハニカムセグメント2の製造は、上述した中から選択された材料にメチルセルロース、ヒドロキシプロポキシルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコール等のバインダー、界面活性剤や水等を添加して、可塑性の坯土とし、この坯土を押出成形することにより、隔壁6によって仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔5を有するハニカム形状とする。そして、これをマイクロ波、熱風等によって乾燥した後、焼結することによりハニカムセグメント2とする。

#### 【0054】

流通孔5の目封じに用いる充填材7としては、ハニカムセグメント2と同様な材料を使用することができる。充填材7による目封じは、目封じをしない流通孔5をマスキングした状態で、ハニカムセグメント2の端面をスラリー状の充填材7に浸漬することにより開口している流通孔5に充填することにより行うことができる。充填材7の充填は、ハニカムセグメント2の成形後における焼成前に行っても、焼成後に行っても良いが、焼成前に行うことにより、焼成工程が1回で終了するため好ましい。

#### 【0055】

以上のようなハニカムセグメント2の作製の後、ハニカムセグメント2の外面にスラリー状の接合材9を塗布し、所定の立体形状となるように複数のハニカムセグメント2を組み付け、この組み付け状態で圧着した後加熱乾燥する。これにより、複数のハニカムセグ

メント2が接合された接合体を作製する。その後、接合体を研削加工し、外周面をコーティング材4によって被覆し、加熱乾燥する。これにより、図1に示すハニカム構造体1を作製することができる。

#### 【0056】

接合材9及びコーティング材4としては、同じ材料を用いることができる。この実施形態において、接合材9及びコーティング材4としては、炭化珪素、窒化珪素、コージェライト、アルミナ、ムライト等のセラミックスを主成分とし、これに、コロイダルシリカ、コロイダルアルミナ等のコロイダルゾル、必要に応じて金属繊維や造孔材を配合した材料を使用することができる。

#### 【0057】

この実施形態の接合材9及びコーティング材4においては、粒状体からなるフィラーを含有するものである。粒状体は無機材料または有機材料からなり、無機材料としては、ガラスビーズ、フライアッシュバルーン等を使用することができ、有機材料としては、澱粉、発泡樹脂等を使用することができる。

#### 【0058】

粒状体の平均直径は、 $10 \sim 300 \mu\text{m}$ の範囲であり、好ましくは $15 \sim 250 \mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $20 \sim 200 \mu\text{m}$ の範囲とすることにより、接合材9及びコーティング材4内における良好な転がり性を確保でき、接合材9およびコーティング材4の塗布性、延び性が向上する。これにより、接合材においては、高い接合強度を発現することができ、耐久性に優れたハニカム構造体1とすることができる。

#### 【0059】

粒状体の平均直径が $10 \mu\text{m}$ よりも小さい場合には、転がり性を付与するフィラーとしての効果が発揮されず、接合材9およびコーティング材4の良好な塗布性、延び性が得られず欠陥が現れる。一方、平均径が $300 \mu\text{m}$ よりも大きい場合には、粒子間隙が大きくなるため、塗布後の脱水速度が大きくなり、接合材9及びコーティング材4の表面が早期に乾き、接合材9では接着しようとするハニカムセグメント2を押し付けても十分な接合強度が得られず、コーティング材4では小孔やクラック、擦れ等の欠陥が生じ易い。

#### 【0060】

なお、粒状体としては、長軸/短軸比が $1.0 \sim 4.0$ の範囲にあることが好ましく、さらには、真球であることが良好である。

#### 【0061】

粒状体は、接合材9及びコーティング材4に対し、 $20 \sim 70$ 体積%の含有率で含まれることが必要である。含有量としては、 $25 \sim 65$ 体積%であることが好ましく、 $30 \sim 60$ 体積%であることがさらに好ましい。含有量が $20$ 体積%よりも少ないとフィラーとしての効果が発揮されず、 $70$ 体積%よりも多いと必要な強度が得られない。

#### 【0062】

粒状体は、中空であることが望ましい。中空粒子を用いることにより、接合材9及びコーティング材4が硬化して形成される接合部及び外周面の密度が低下し、ヤング率を低減することが可能となる。これにより、接合部及び外周面の耐熱衝撃性が向上し、使用時のクラック発生を抑制することができる。

#### 【0063】

この実施形態において、接合材9及びコーティング材4に対し、上記粒状体に加えて、無機粒子、酸化物繊維、コロイド状酸化物の内の一種または複数種を添加することができる。これらを添加することにより、接合材9及びコーティング材4としての特性を向上させることができる。

#### 【0064】

無機粒子の種類としては、例えば、炭化珪素、窒化珪素、コージェライト、アルミナ、ムライト、ジルコニア、燐酸ジルコニウム、アルミニウムチタネート、チタニア及びこれらの組み合わせよりなる群から選ばれるセラミックス、Fe-Cr-Al系金属、ニッケル系金属又は金属SiとSiC等を好適に用いることができる。

## 【0065】

酸化物繊維としては、例えば、アルミノシリケート質繊維、その他の繊維を使用することができる。

## 【0066】

コロイド状酸化物としては、例えば、シリカゾル又はアルミナゾル等を使用することができる。

## 【0067】

接合材 9 及びコーティング材 4 の熱伝導率としては、 $0.1 \sim 5.0 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ であることが良好であり、 $0.2 \sim 3.0 \text{ W/m} \cdot \text{k}$ であることがより好ましい。熱伝導率が  $0.1 \text{ W/m} \cdot \text{k}$  よりも小さいと、ハニカムセグメント 2 間の熱伝達を阻害してハニカム構造体 1 内の温度を不均一にするため好ましくない。熱伝導率が  $5.0 \text{ W/m} \cdot \text{k}$  よりも大きい場合には、接合強度が低下する恐れがあるとともに、ハニカム構造体 1 の製造上困難となる。

## 【0068】

接合材 9 及びコーティング材 4 の熱膨張率としては、熱衝撃などによってクラックが生ずるのを防ぐため、比較的低いことが好ましく、 $1 \times 10^{-6} \sim 8 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  の範囲であることが良好であり、 $1.5 \times 10^{-6} \sim 7 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  の範囲であることがさらに好ましく、 $2 \times 10^{-6} \sim 6 \times 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  の範囲であることが最も好ましい。

## 【実施例】

## 【0069】

この実施例では、原料として SiC 粉末及び Si 粉末を 80 : 20 の重量割合で混合し、これに造孔材として澱粉、発泡樹脂を加え、さらにメチルセルロース及びヒドロキシプロポキシルメチルセルロース、界面活性剤及び水を添加して、可塑性の坯土を作製した。この坯土を押出成形し、マイクロ波及び熱風で乾燥して隔壁 6 の厚さが  $310 \mu\text{m}$ 、セル密度が約  $46.5 \text{ セル/cm}^2$  ( $300 \text{ セル/平方インチ}$ )、断面が一辺  $35 \text{ mm}$  の正方形、長さが  $152 \text{ mm}$  のハニカムセグメント 2 を得た。

## 【0070】

このハニカムセグメント 2 に対し、端面が市松模様状を呈するように、隣接する流通孔 5 が互いに反対側となる一方の端部でハニカムセグメント 2 の製造に用いた材料と同様の材料と用いて目封じし、乾燥させた後、大気雰囲気中約  $400^\circ\text{C}$  で脱脂し、その後、Ar 不活性雰囲気中で約  $1450^\circ\text{C}$  で焼成して、Si 結合 SiC のハニカムセグメント 2 を得た。

## 【0071】

一方、フィラーとして発泡樹脂（例えば、アクリルニトリル樹脂）、有機バインダーとしてメチルセルロース、無機粒子として SiC 粉末、酸化物繊維としてアルミノシリケート質繊維、無機バインダーとしてシリカゲル 40 質量%水溶液および粘土を混合、水を加えてミキサーを用いて 30 分間混練を行い、表 1 に示す組成の接合材 A ~ K を得た。表 1 における接合材 A ~ K の内、接合材 A ~ E は後述するように、本発明の実施例となり、接合材 F ~ K は比較例となる。

## 【0072】

【表 1】

接合材 No.	発泡樹脂 平均径 [ $\mu\text{m}$ ]	発泡樹脂 [質量%]	発泡樹脂 [体積%]	メチルセルロース [質量%]	SiC 粉末 [質量%]	アルミシリケート 繊維 [質量%]	シリカゲル [質量%]	粘土 [質量%]	水 [質量%]
A	15	1	40	0	41	24	23	1	10
B	100	1	40	0	41	24	23	1	10
C	250	1	40	0	41	24	23	1	10
D	100	0.5	25	0	41	24.5	23	1	10
E	100	4	65	0	40	24	22	1	9
F	5	1	40	0	41	24	23	1	10
G	500	1	40	0	41	24	23	1	10
H	—	0	0	0	42	25	22	1	10
I	100	0.2	10	0	42	25	22	0.8	10
J	100	7	80	0	40	23	22	1	7
K	—	0	0	1	39	22	22	1	15

## 【0073】

表 2 及び図 5 は、表 1 に接合材 B、H、K についてミキサーによって混練中に、一定時間毎に粘度を測定した結果を示す。図 5 において、特性曲線 B 1 は接合材 B、特性曲線 H 1 は接合材 H、特性曲線 K 1 は接合材 K である。

## 【0074】

【表 2】

	接合材 No.	混練 5 分後粘度 [ $\text{dPa}\cdot\text{s}$ ]	混練 30 分後粘度 [ $\text{dPa}\cdot\text{s}$ ]	混練時粘度変化 [ $\text{dPa}\cdot\text{s}$ ]
実施例 1	B	620	510	110
比較例 1	H	600	490	110
比較例 2	K	800	500	300

## 【0075】

これらの結果からわかるように、有機バインダーを添加した接合材 K（特性曲線 K 1）では混練初期に粘度が増大した後、15 分を過ぎた時点付近から粘度変化がほぼ見られなくなる。これに対し、発泡樹脂を添加した接合材 B（特性曲線 B 1）では、混練を通じて粘度変化がほとんど見られない。

## 【0076】

次に、表 1 に示す接合材を用いてハニカムセグメント 2 を接合した。この接合では、接合材 9 の厚みが 1 mm となるように、各々複数個ずつ接合した後、200℃、5 時間乾燥してハニカム構造体 1 を得た。それぞれのハニカム構造体 1 から、所定の強度試験用サンプルを 10 個ずつ切り出し、JIS R1601 に従って 3 点曲げ接合強度の測定を行った。結果を表 3 に示す。

## 【0077】

表 3 の結果から分かるように、フィラーを添加しない接合材では、接合部に一部剥れが見られた。また、同様に平均径が 10  $\mu\text{m}$  よりも小さい発泡樹脂を添加した接合材及び発泡樹脂の添加量が 20 体積% よりも少ない接合材では、延び性不良のために、接合部に一

部剥れが見られた。

【0078】

【表3】

	接合材 No.	接合層外観	接合強度[MPa]
実施例 2	A	接合剥れ無し	2.9
実施例 3	B	接合剥れ無し	3.7
実施例 4	C	接合剥れ無し	2.7
実施例 5	D	接合剥れ無し	3.3
実施例 6	E	接合剥れ無し	3.2
比較例 3	F	接合剥れ有り	1.2
比較例 4	G	接合剥れ無し	0.9
比較例 5	H	接合剥れ有り	1.4
比較例 6	I	接合剥れ有り	1.2
比較例 7	J	接合剥れ無し	0.3

【0079】

さらに、接合材 B、H に対して密度と強度／ヤング率比を比較した。結果を表 4 に示す。

【0080】

表 4 に示すように、中空の発泡樹脂を添加することにより、強度／ヤング率比が向上することが確認された。これにより使用時の耐熱衝撃性の向上が期待できる。

【0081】

【表 4】

	接合材 No.	密度[g/cm <sup>3</sup> ]	強度[MPa]	ヤング率[GPa]	強度*1000／ヤング率比
実施例 7	B	1.5	1.2	0.8	1.5
比較例 8	H	2.1	1.4	1.2	1.2

【0082】

さらに、表 1 のそれぞれの接合材に、外配で水を 5 % 添加してコーティング材を作製した。そして、ハニカムセグメント 2 を 16 本接合して得られた接合体の外周を研削した後、その外周部に対してコーティング材を塗布し、200℃で 2 時間乾燥してハニカム構造体 1 を得た。表 5 は、このハニカム構造体 1 に対して、目視によって検査した結果を示す。

【0083】

【表 5】

	コーティング材 No.	接合層外観		
		小孔	クラック	擦れ
実施例 8	L	無し	無し	無し
実施例 9	M	無し	無し	無し
実施例 10	N	無し	無し	無し
実施例 11	O	無し	無し	無し
実施例 12	P	無し	無し	無し
比較例 9	Q	無し	無し	有り
比較例 10	R	無し	有り	無し
比較例 11	S	有り	有り	有り
比較例 12	T	無し	無し	有り
比較例 13	U	無し	有り	無し

## 【0084】

表 5 の結果からわかるように、平均径が直径  $10 \sim 300 \mu\text{m}$  の範囲を超えるフィラーを添加したコーティング材及びフィラーの含有量が  $20 \sim 70$  体積% を超えるコーティング材では小孔、クラック、擦れからなる欠陥が生じた。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0085】

【図 1】 本発明の一実施形態のハニカム構造体を示す斜視図である。

【図 2】 ハニカム構造体の端面図である。

【図 3】 ハニカムセグメントの斜視図である。

【図 4】 図 3 における A-A 線断面図である。

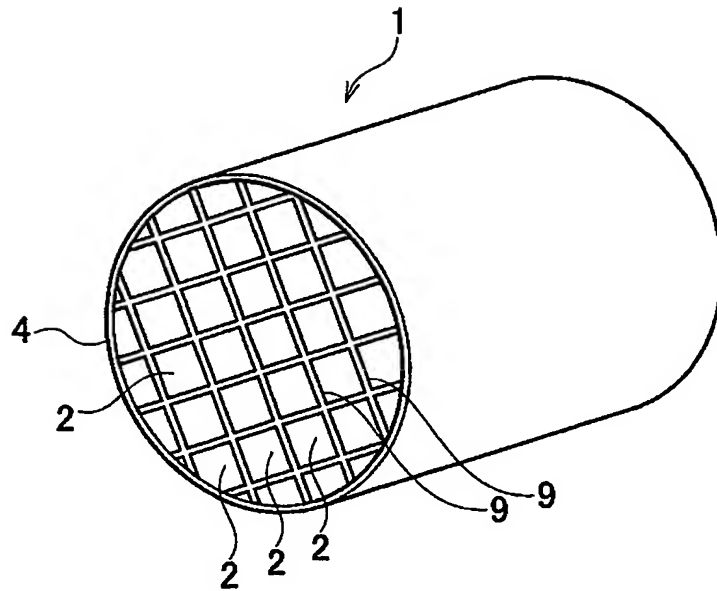
【図 5】 接合材への混練による粘度の変化を示す特性図である。

## 【符号の説明】

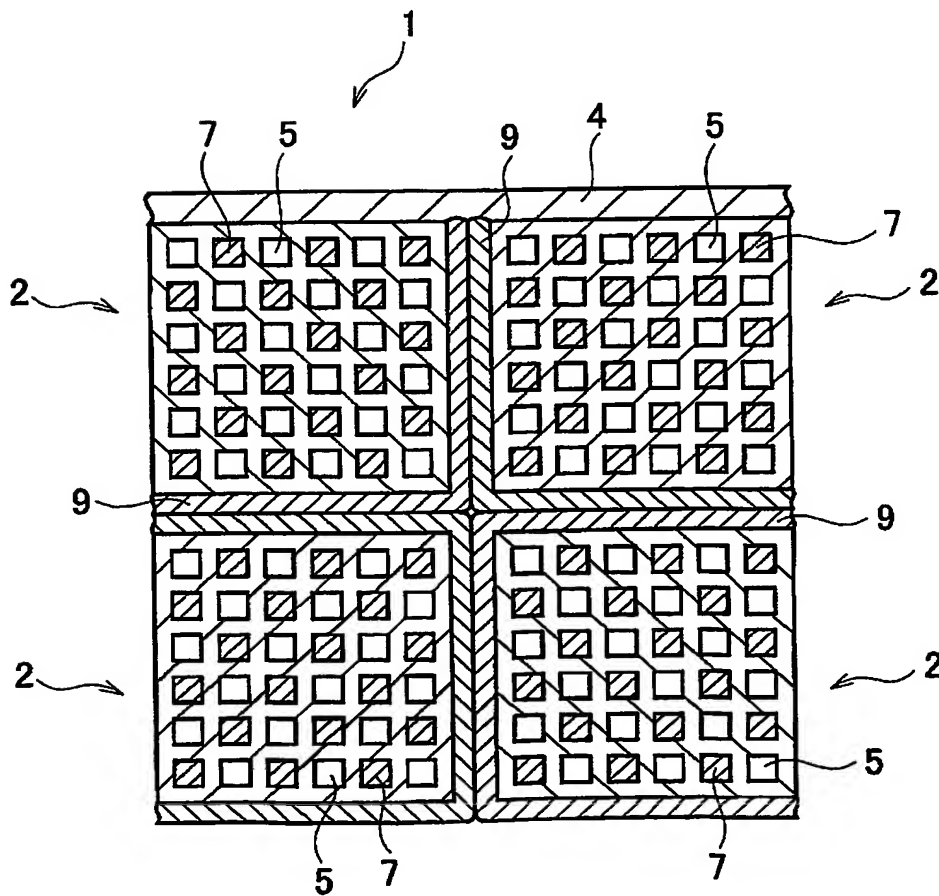
## 【0086】

- 1 ハニカム構造体
- 2 ハニカムセグメント
- 4 コーティング材
- 5 流通孔
- 6 隔壁
- 7 充填材
- 9 接合材

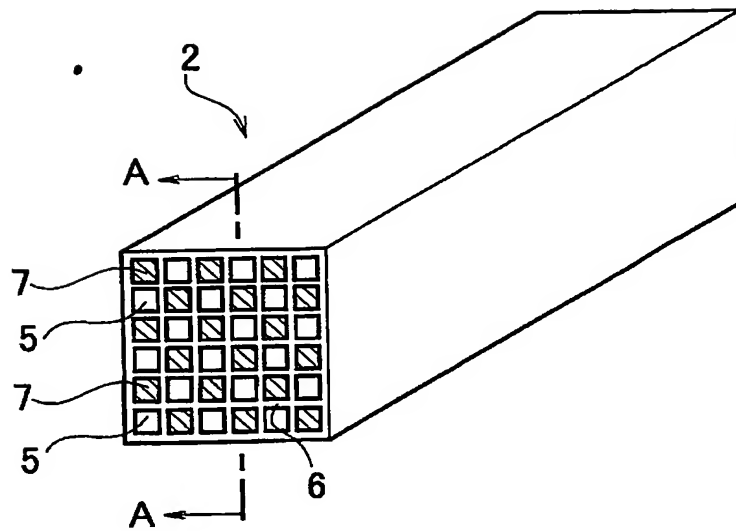
【書類名】 図面  
【図 1】



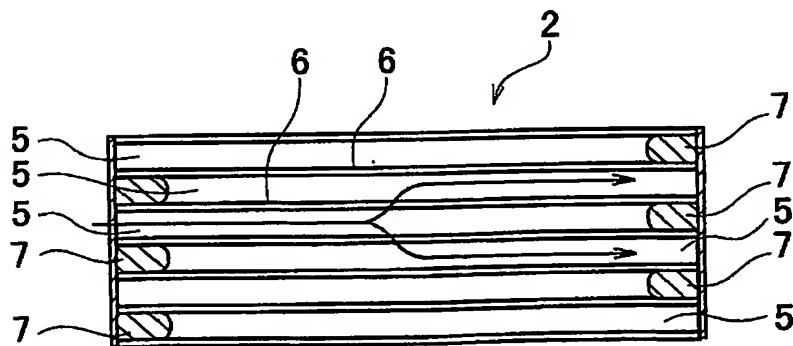
【図 2】



【図 3】

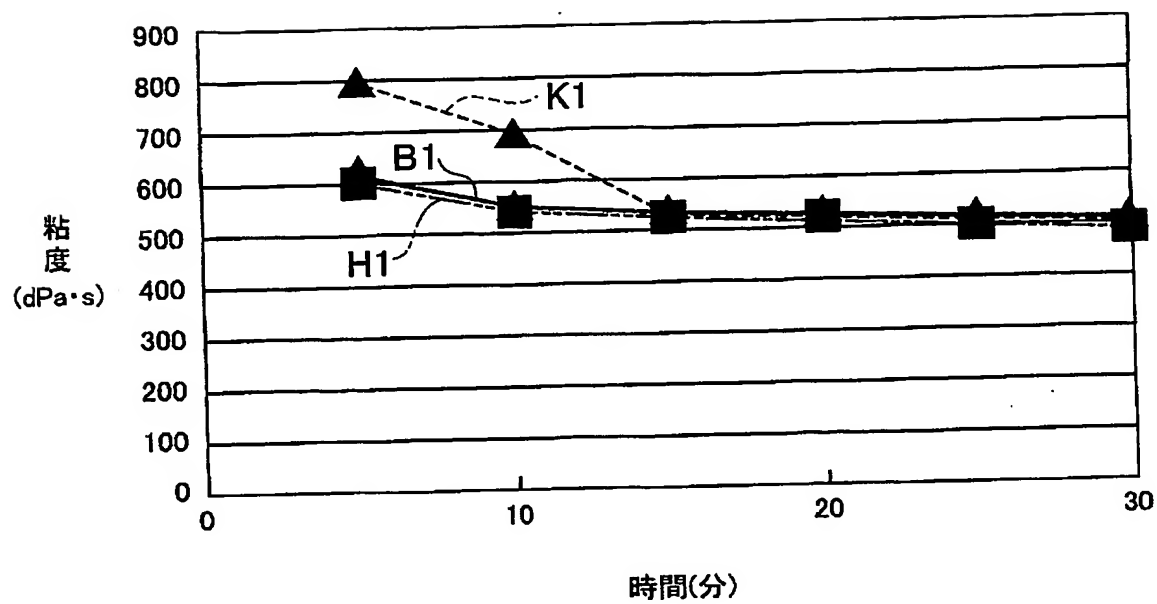


【図 4】





【図 5】



**【書類名】 要約書****【要約】**

**【課題】** 接合材やコーティング材の塗布性及び延び性を良好に向上させることを可能とし、クラック等の欠陥の発生を確実に抑制する。

**【解決手段】** ハニカム構造体 1 は、多孔質の隔壁 6 によって仕切られた軸方向に貫通する多数の流通孔 5 を有したハニカムセグメント 2 の複数が接合材によって接合され、外周面がコーティング材 4 によって被覆されている。接合材が粒状体からなるフィラーを含有したセラミックスを主成分とし、コーティング材 4 が粒状体からなるフィラーを含有したセラミックスを主成分としている。

**【選択図】** 図 4

## 認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2003-382536
受付番号	50301871059
書類名	特許願
担当官	第五担当上席 0094
作成日	平成 15 年 11 月 19 日

## &lt;認定情報・付加情報&gt;

## 【特許出願人】

【識別番号】	000004064
【住所又は居所】	愛知県名古屋市長区瑞穂区須田町 2 番 5 6 号
【氏名又は名称】	日本碍子株式会社

## 【代理人】

【識別番号】	100108707
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門 1 丁目 2 番 3 号 虎ノ門第 1 ビル 9 階 三好内外国特許事務所
【氏名又は名称】	中村 友之

## 【代理人】

【識別番号】	100083806
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門 1 丁目 2 番 3 号 虎ノ門第一ビル 9 階 三好内外国特許事務所
【氏名又は名称】	三好 秀和

## 【選任した代理人】

【識別番号】	100095500
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門 1 丁目 2 番 3 号 虎ノ門第一ビル 9 階 三好内外国特許事務所
【氏名又は名称】	伊藤 正和

## 【選任した代理人】

【識別番号】	100101247
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門 1 丁目 2 番 3 号 虎ノ門第一ビル 9 階 三好内外国特許事務所
【氏名又は名称】	高橋 俊一

## 【選任した代理人】

【識別番号】	100098327
【住所又は居所】	東京都港区虎ノ門 1 丁目 2 番 3 号 虎ノ門第一ビル 9 階 三好内外国特許事務所
【氏名又は名称】	高松 俊雄

【選任した代理人】

【識別番号】 100108914

【住所又は居所】 東京都港区虎ノ門1丁目2番3号 虎ノ門第1ビル9階 三好内外国特許事務所

【氏名又は名称】 鈴木 壯兵衛

【選任した代理人】

【識別番号】 100104031

【住所又は居所】 東京都港区虎ノ門1丁目2番3号 虎ノ門第一ビル9階 三好内外国特許事務所

【氏名又は名称】 高久 浩一郎

特願 2003-382536

ページ: 1/E

出願人履歴情報

識別番号

[000004064]

1. 変更年月日

1990年 8月24日

[変更理由]

新規登録

住所

愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号

氏名

日本碍子株式会社